



Practitioner's Docket No.: 791-147

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the application of: Masahiro KIDA

Ser. No.: 09/863,680

Filed: May 23, 2001

For: PROCESS FOR PRODUCTION OF INTERMETALLIC COMPOUND-BASED COMPOSITE MATERIAL

Group Art Unit: Not Assigned

Examiner: Not Assigned

AUG 09 2001

RECEIVED

Assistant Commissioner for Patents  
Washington, DC 20231

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service as first class mail addressed to Assistant Commissioner for Patents, Washington D.C. 20231 on August 2, 2001.

Gina M. Husak

SUBMISSION OF CERTIFIED COPY(IES) OF PRIORITY DOCUMENT(S)

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country was requested by applicants on May 23, 2001 for the above-identified application:

Japanese Application 2000-154,607, filed May 25, 2000, and Japanese Application 2001-149,499, filed May 18, 2001.

In support of this claim, certified copies of the Japanese Applications are enclosed herewith.

Respectfully submitted,

August 2, 2001

Date

Stephen P. Burr

Reg. No. 32,970

SPB/gmh

BURR & BROWN  
P.O. Box 7068  
Syracuse, NY 13261-7068

Customer No.: 25191  
Telephone: (315) 233-8300  
Facsimile: (315) 233-8320



本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 5月18日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-149499

出 願 人

Applicant(s):

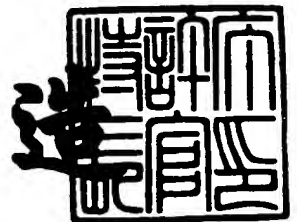
日本碍子株式会社

RECEIVED  
AUG 0 9 2001  
TC 1700

2001年 6月26日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3060370

【書類名】 特許願

【整理番号】 WP03628

【提出日】 平成13年 5月18日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 B22D 19/00  
C04B 41/88

【発明の名称】 金属間化合物基複合材料の製造方法

【請求項の数】 15

【発明者】  
【住所又は居所】 愛知県名古屋市長区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式  
会社内

【氏名】 来田 雅裕

【特許出願人】  
【識別番号】 000004064  
【氏名又は名称】 日本碍子株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100088616  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 渡邊 一平

【先の出願に基づく優先権主張】  
【出願番号】 特願2000-154607  
【出願日】 平成12年 5月25日

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 009689  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

特 2 0 0 1 - 1 4 9 4 9 9

【包括委任状番号】 9001231

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 金属間化合物基複合材料の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法であって、

該強化材と金属粉末とを混合し、得られた混合粉体を容器に充填した後、

該充填された混合粉体の上方に Al を配し、次いで、該混合粉体の間隙に該 Al を溶融合浸することにより、

該金属粉末と該 Al とが自己燃焼反応を生起し、該 Al がアルミナイド金属間化合物に置換される際に、

残存する該 Al と、該アルミナイド金属間化合物の質量比が、 $0 : 10 \sim 3 : 7$ となるように、該 Al と該金属粉末を配合することを特徴とする金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 2】 該金属粉末として Ti を用い、該 Al の質量を A、該 Ti の質量を B としたとき、 $A : B = 1 : 0.34 \sim 1 : 0.57$  の関係を満足するように該 Al と該 Ti を配合する請求項 1 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 3】 該金属粉末として Ni を用い、該 Al の質量を A、該 Ni の質量を C としたとき、 $A : C = 1 : 0.47 \sim 1 : 0.72$  の関係を満足するように該 Al と該 Ni を配合する請求項 1 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 4】 該金属粉末として Nb を用い、該 Al の質量を A、該 Nb の質量を D としたとき、 $A : D = 1 : 0.75 \sim 1 : 1.13$  の関係を満足するように該 Al と該 Nb を配合する請求項 1 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 5】 該 Al が実質的に残存しない配合比で、該 Al と該金属粉末を配合する請求項 1 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 6】 該金属粉末として Ti を用い、該 Al の質量を A、該 Ti の質量を B としたとき、 $A : B = 1 : 0.57 \sim 1 : 6.14$  の関係を満足するように

該 A 1 と該 T i を配合する請求項 5 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 7】 該金属粉末として N i を用い、該 A 1 の質量を A、該 N i の質量を C としたとき、 $A : C = 1 : 0.72 \sim 1 : 7.20$  の関係を満足するように該 A 1 と該 N i を配合する請求項 5 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 8】 該金属粉末として N b を用い、該 A 1 の質量を A、該 N b の質量を D としたとき、 $A : D = 1 : 1.13 \sim 1 : 12.16$  の関係を満足するように該 A 1 と該 N b を配合する請求項 5 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 9】 金属間化合物基複合材料に占める強化材の体積分率を  $10 \sim 70 \text{ vol} \%$  とする請求項 1 ～ 8 のいずれか一項に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 10】 強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法であって、

該強化材、金属粉末、及び、A 1 によって還元可能な酸化物粉末を混合し、得られた混合粉体を容器に充填した後、

該充填された混合粉体の上方に A 1 を配し、次いで、該混合粉体の間隙に該 A 1 を溶融含浸することにより、

該金属粉末及び該酸化物粉末と、該 A 1 とが反応を生起し、該 A 1 がアルミナイド金属間化合物に置換される際に、

残存する該 A 1 と、該アルミナイド金属間化合物の質量比が、 $0 : 10 \sim 3 : 7$  となるように、該 A 1、該金属粉末、及び、該酸化物粉末を配合することを特徴とする金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 11】 該 A 1、該金属粉末、及び、該酸化物粉末が実質的に残存しない配合比で、該 A 1、該金属粉末、及び、該酸化物粉末を配合する請求項 10 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 12】 金属間化合物基複合材料に占める強化材の体積分率を  $10 \sim 70 \text{ vol} \%$  とする請求項 10 又は 11 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方

法。

【請求項 1 3】 繊維、粒子、ウィスカーのいずれかの形状を有する無機材料を該強化材として用いる請求項 1 ～ 1 2 のいずれか一項に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 1 4】  $Al_2O_3$ 、 $AlN$ 、 $SiC$ 、 $Si_3N_4$ のいずれかの無機材料を用いる請求項 1 3 に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【請求項 1 5】 強化材の平均粒径に比して、5 ～ 8 0 % の平均粒径の金属粉末を用いる請求項 1 ～ 1 4 のいずれか一項に記載の金属間化合物基複合材料の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】 本発明は金属間化合物基複合材料の製造方法に係り、更に詳しくは、金属間化合物調製のための前処理を必要とせず、且つ、マトリックスと強化材との複合化の際に高温・高圧条件を必要としない金属間化合物基複合材料の製造方法に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】 複合材料とは、複数素材を巨視的に混合した組成集合体であり、各素材の持つ機械特性を相補的に利用して、単独素材では実現できなかった特性発現を可能にしたものである。基本的には、材料と材料を組み合わせる技術手法であり、マトリックスと強化材、使用目的、又はコスト等により、種々の組み合わせが存在する。

【0 0 0 3】 その中でも金属基複合材料、或いは金属間化合物基複合材料とは、 $Al$ 、 $Ti$ 、 $Ni$ 、 $Nb$ 等の金属、若しくは $TiAl$ 、 $Ti_3Al$ 、 $Al_3Ti$ 、 $NiAl$ 、 $Ni_3Al$ 、 $Ni_2Al_3$ 、 $Al_3Ni$ 、 $Nb_3Al$ 、 $Nb_2Al$ 、 $Al_3Nb$ 等の金属間化合物をマトリックスとし、セラミックス等の無機材料を強化材として複合材料化されたものである。従って、金属基複合材料、或いは金属間化合物基複合材料は、軽量且つ高強度を有するといった特性を生かし、宇宙・航空分野を始めとして多方面での利用が図られている。

【0 0 0 4】 また、一般的に、金属間化合物基複合材料は金属基複合材料に比

して破壊靱性が低いという欠点はあるが、反面マトリックスの機械的・物理的特性に起因して、耐熱特性、耐摩耗特性に優れており、また低熱膨張、高剛性であるという特徴をも有している。

【0005】 金属間化合物基複合材料の製造方法としては、予め金属間化合物粉末をメカニカルアロイング(MA)等にて製造し、強化材となる繊維及び／又は粒子等と共に、高温・高圧条件下においてホットプレス(HP)もしくは熱間等方圧成形(HIP)する方法が挙げられる。また、金属基複合材料の製造方法としても加圧含浸法や溶湯鍛造法等のように高圧を必要とする方法を挙げることができる。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 金属間化合物基複合材料を製造する従来の製造方法における問題点として、緻密な金属間化合物基複合材料の製造を行うためには、HP及びHIP等の製造方法によって高温・高圧を負荷し、金属間化合物を焼結することで複合材料の緻密化を行う必要がある。このため、前処理工程の必要性があるだけでなく、製造装置の性能や規模に制約があり、大型、或いは複雑形状の複合材料の製造が極めて困難であると共に、最終製品の形状を考慮したニアネットシェイプ化を行うことができず、その後の工程において機械加工処理が必要となるといった問題点をも有している。

【0007】 また、前処理工程として、予めMA等による金属間化合物粉末の合成が必要であり、製造工程の多段階・煩雑化といった問題点を有している。従って、上述のように、従来の金属間化合物基複合材料の製造においては多段階に渡る工程が必要であると共に、高温・高圧条件下において行う製造方法であるために極めて高コストな製造方法である。

【0008】 これらの問題を解消すべく、特許第2609376号公報、特開平9-227969号公報においては、Al等により還元可能な金属酸化物等からなる予備成形体を用い、その表面層中において液状のAl等と反応させ、その場合成にてアルミナイド金属間化合物、及び酸化物(特に $Al_2O_3$ )を合成させる複合材料の製造方法が開示されている。

【0009】 しかしながら、特許第2609376号公報、及び、特開平9-



2 2 7 9 6 9 号公報に示される製造方法によれば、得られる複合材料中に分散される強化材の種類が限定されるために、目的となる材料設計が特定の組み合わせに限定され、複合材料特性を変化させることが困難となる。また、用いる材料の比率を厳密に制御しなければ、金属酸化物等、又は A l 等が残存してしまうといった問題点をも有している。更には、瞬時に大量の反応熱を生ずるため、反応制御が困難な場合がある。

【0 0 1 0】 また特許第 3 1 0 7 5 6 3 号公報においては、微細片の形態をなす強化材と、酸素及び窒素のゲッター効果を有する T i 等の微細片からなるプリフォームを形成し、これを A l 等の溶湯中に浸漬することで、A l 等の金属をマトリックスとする金属基複合材料の製造方法が開示されている。

【0 0 1 1】 しかしながら、特許第 3 1 0 7 5 6 3 号公報に示される製造方法によれば、製造過程で混合粉に圧力をかけてプリフォームをつくり、このプリフォームを A l 等の溶湯中に保持する必要があるため、設備の都合上、得られる製品形状には一定の制約がある。また、得られる複合材料は金属をマトリックスとする金属基複合材料に限定される。

【0 0 1 2】 本発明は、このような従来技術の有する問題点に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは製造工程を削減し、且つ大型・複雑形状を有する金属間化合物基複合材料の製造方法を提供することにある。

【0 0 1 3】

【課題を解決するための手段】 即ち、本発明によれば、強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法であって、該強化材と金属粉末とを混合し、得られた混合粉体を容器に充填した後、該充填された混合粉体の上方に A l を配し、次いで、該混合粉体の間隙に該 A l を溶融合浸することにより、該金属粉末と該 A l とが自己燃焼反応を生起し、該 A l がアルミナイド金属間化合物に置換される際に、残存する該 A l と、該アルミナイド金属間化合物の質量比が、0 : 1 0 ~ 3 : 7 となるように、該 A l と該金属粉末を配合することを特徴とする金属間化合物基複合材料の製造方法が提供される。

【0 0 1 4】 本発明においては、金属粉末として T i を用い、A l の質量を A 、T i の質量を B としたとき、 $A : B = 1 : 0.34 \sim 1 : 0.57$  の関係を満

足するようにAlとTiを配合することが好ましい。

【0015】 また、本発明においては、金属粉末としてNiを用い、Alの質量をA、Niの質量をCとしたとき、 $A : C = 1 : 0.47 \sim 1 : 0.72$ の関係を満足するようにAlとNiを配合することが好ましい。

【0016】 なお、本発明においては、金属粉末としてNbを用い、Alの質量をA、Nbの質量をDとしたとき、 $A : D = 1 : 0.75 \sim 1 : 1.13$ の関係を満足するようにAlとNbを配合することも同様に好ましい。

【0017】 本発明においては、Alが実質的に残存しない配合比で、Alと金属粉末を配合することが好ましく、また、金属粉末としてTiを用い、Alの質量をA、Tiの質量をBとしたとき、 $A : B = 1 : 0.57 \sim 1 : 6.14$ の関係を満足するようにAlとTiを配合することが好ましい。

【0018】 また、本発明においては、金属粉末としてNiを用い、Alの質量をA、Niの質量をCとしたとき、 $A : C = 1 : 0.72 \sim 1 : 7.20$ の関係を満足するようにAlとNiを配合することが好ましい。

【0019】 なお、本発明においては、金属粉末としてNbを用い、Alの質量をA、Nbの質量をDとしたとき、 $A : D = 1 : 1.13 \sim 1 : 12.16$ の関係を満足するようにAlとNbを配合することも同様に好ましい。

【0020】 更に、本発明においては、金属間化合物基複合材料に占める強化材の体積分率を $10 \sim 70 \text{ vol} \%$ とすることが好ましい。

【0021】 一方、本発明によれば、強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法であって、該強化材、金属粉末、及び、Alによって還元可能な酸化物粉末を混合し、得られた混合粉体を容器に充填した後、該充填された混合粉体の上方にAlを配し、次いで、該混合粉体の間隙に該Alを溶融合浸することにより、該金属粉末及び該酸化物粉末と、該Alとが反応を生起し、該Alがアルミナイド金属間化合物に置換される際に、残存する該Alと、該アルミナイド金属間化合物の質量比が、 $0 : 10 \sim 3 : 7$ となるように、該Al、該金属粉末、及び、該酸化物粉末を配合することを特徴とする金属間化合物基複合材料の製造方法が提供される。

【0022】 本発明においては、Al、金属粉末、及び、酸化物粉末が実質的

に残存しない配合比で、Al、金属粉末、及び、酸化物粉末を配合することが好ましく、金属間化合物基複合材料に占める強化材の体積分率を10～70vol%とすることが好ましい。

【0023】 更に、本発明においては、繊維、粒子、ウイスキーのいずれかの形状を有する無機材料を強化材として用いることが好ましく、 $Al_2O_3$ 、AlN、SiC、 $Si_3N_4$ のいずれかの無機材料を用いることが好ましい。

【0024】 また、本発明においては、強化材の平均粒径に比して、5～80%の平均粒径の金属粉末を用いることが好ましい。

【0025】

【発明の実施の形態】 以下、本発明を実施形態に基づき詳しく説明するが、本発明はこれらの実施形態に限定されるものではない。

【0026】 本発明の第1の実施態様について説明する。本発明の第1の実施態様は、強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法であって、予め強化材と金属粉末を混合しておき、得られた混合粉体を適当な容器に充填した後、この上方にAlを配し、次いで、多孔体である混合粉体の間隙にAlを溶融合浸することにより、自己燃焼反応、即ち、*in-situ*（その場）合成でアルミナイド金属間化合物が生成する。このとき、Alがアルミナイド金属間化合物に置換してマトリックスが形成され、目的とする金属間化合物基複合材料が製造される。

【0027】 また、形成されるマトリックス中に残存するAlと、アルミナイド金属間化合物の質量比が、0：10～3：7となるように、Alと金属粉末を配合する。前処理として金属間化合物を調製する必要がなく、従って、製造工程とコストの削減が容易に達成された金属間化合物基複合材料の製造方法である。また、形成されるマトリックス中にAlを残存させることにより、破壊靱性に優れた金属間化合物基複合材料を得ることが可能となる。

【0028】 なお、残存するAlとアルミナイド金属間化合物の質量比が、3：7よりもAlが多くなると、得られる金属間化合物基複合材料の破壊靱性値は高くなる反面、ヤング率が低下して高剛性材料としての魅力が低下し、またAlの融点域において強度低下等の現象が起こり易くなるために好ましくない。適度

な破壊靱性と強度とを示す金属間化合物基複合材料を得るといった観点からは、A 1 とアルミナイド金属間化合物の質量比を 0 : 1 0 ~ 2 : 8 とすることが好ましい。

【0 0 2 9】 更に、本発明においては、A 1 と各種金属粉末との自己燃焼反応熱を利用してアルミナイド金属間化合物の生成を推進するために、低温条件下において金属間化合物基複合材料の製造が可能である。さらに、従来の製造方法である、HP 若しくはHIP のような高圧を必要とせず、無加圧浸透による金属間化合物基複合材料の製造が可能である。このことにより、製造装置の性能上困難であった、比較的大きな、或いは、複雑な形状を有する金属間化合物基複合材料の製造が可能となる。

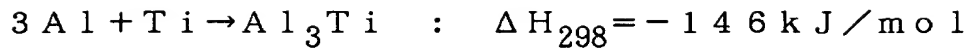
【0 0 3 0】 また、A 1 と金属粉末の自己燃焼反応により、反応系内が瞬間的に高温に保持されるため、A 1 溶湯が自己燃焼反応を生起しながら強化材間隙中に無加圧浸透され、高圧を負荷せずに緻密な金属間化合物基複合材料を製造することが可能である。

【0 0 3 1】 なお、本発明にいう「マトリックス中に残存するA 1 と、アルミナイド金属間化合物の質量比が、0 : 1 0」とは、形成されるマトリックス中にアルミニウムが実質的に残存していない状態のことであって、得られる金属間化合物基複合材料に、アルミニウムの物理的特性が実質的に反映されない程度に少ない状態であることをいうものとする。

【0 0 3 2】 また、本発明においては、金属粉末としてTi、Ni、Nbのいずれかを使用することが好ましい。混合粉体の間隙にA 1 が溶融含浸される際に、A 1 と金属粉末が反応することにより、アルミナイド金属間化合物が生成する。このときの反応の代表例を数1～数3に示す。数1～数3において示す通り、これらの反応は発熱反応（自己燃焼反応）であり、本発明に係る金属間化合物基複合材料の製造方法では、この反応熱を利用する。従って、HP等において必要であった、高温・高圧力条件は不必要となる。即ち、本発明においては製造装置の性能上困難であった、比較的大きな、或いは、複雑な形状を有する金属間化合物基複合材料等の製造が可能となる。

【0 0 3 3】

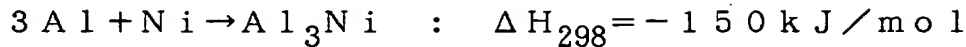
【数 1】



$\Delta H$  : 生成反応熱 ( $\Delta < 0$  にて発熱反応)

【0034】

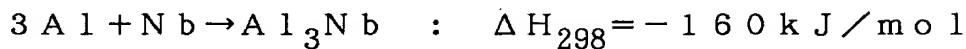
【数 2】



$\Delta H$  : 生成反応熱 ( $\Delta < 0$  にて発熱反応)

【0035】

【数 3】



$\Delta H$  : 生成反応熱 ( $\Delta < 0$  にて発熱反応)

【0036】 また、特許第 2 6 0 9 3 7 6 号公報、及び、特開平 9 - 2 2 7 9 6 9 号公報に示される製造方法とは異なり、*in-situ* で合成するのはマトリックスのみである。したがって、強化材の種類については自由に選択可能であり、所望の特性を有する複合材料を任意に選択し、且つ、所望の物理的特性を有する複合材料を製造することができる。

更に、強化材の種類、及び使用量を任意に選択・設定することにより、反応熱を制御することも容易であるために、工業的な製造工程にも適用可能である。

【0037】 本発明においては、Al と自己燃焼反応を起こす金属粉末として Ti を用いた場合、Al の質量を A、Ti の質量を B としたときに、 $A : B = 1 : 0.34 \sim 1 : 0.57$  の範囲で配合することが好ましい。この配合割合とすることにより、マトリックスに残存する Al と、アルミナイド金属間化合物の質量比が、 $0 : 10 \sim 3 : 7$  である金属間化合物基複合材料を得ることができる。

【0038】 また、Al と自己燃焼反応を起こす金属粉末として Ni を用いた場合、Al の質量を A、Ni の質量を C としたときに、 $A : C = 1 : 0.47 \sim 1 : 0.72$  の範囲で配合することが好ましい。この配合割合とすることにより、マトリックスに残存する Al と、アルミナイド金属間化合物の質量比が、 $0 : 10 \sim 3 : 7$  である金属間化合物基複合材料を得ることができる。

【0039】 更に、Al と自己燃焼反応を起こす金属粉末として Nb を用いた

場合、Alの質量をA、Nbの質量をDとしたときに、 $A:D=1:0.75\sim 1:1.13$ の範囲で配合することが好ましい。この配合割合とすることにより、マトリックスに残存するAlと、アルミナイド金属間化合物の質量比が、 $0:10\sim 3:7$ である金属間化合物基複合材料を得ることができる。

【0040】 また、本発明に係る金属間化合物基複合材料の製造方法においては、形成されるマトリックス中に、Alが実質的に残存しない配合比で、Alと金属粉末を配合することが好ましく、このことにより、Alの融点域において強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を得ることができる。このため、後述する400℃条件下、高温曲げ強度試験において、マトリックス中にAlが残存した場合のような強度低下等の現象を示さずに、良好な耐熱性を示すこととなる。これに対して、マトリックス中にAlを残存させた場合においては、耐熱性は前述の如く低下するが、金属間化合物の短所でもある脆性的な特徴が延性相となるAlによって改善されるために、破壊靱性値が増大した金属間化合物基複合材料を得ることが可能となる。従って、前述の配合比率でAlと金属粉末を用いることにより、優れた強度特性等を示す金属間化合物基複合材料を製造することができる。

【0041】 Alと自己燃焼反応を起こす金属粉末としてTiを用いた場合、Alの質量をA、Tiの質量をBとしたときに、 $A:B=1:0.57\sim 1:6.14$ の範囲で配合することが好ましい。この配合割合とすることにより、マトリックスの全体を低融点のAlから高融点のアルミナイド金属間化合物へと置換することができる。即ち、アルミナイド金属間化合物を予め調製する工程が不要になると共に、Alの融点域において強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を製造することができる。

【0042】 また、Alと自己燃焼反応を起こす金属粉末としてNiを用いた場合、Alの質量をA、Niの質量をCとしたときに、 $A:C=1:0.72\sim 1:7.20$ の範囲で配合することが好ましい。この配合割合とすることにより、前述したTiを用いた場合と同様に、マトリックスの全体を低融点のAlから高融点のアルミナイド金属間化合物へと置換することができる。即ち、アルミナイド金属間化合物を予め調製する工程が不要になると共に、Alの融点域におい

て強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を製造することができる。

【0043】 さらに、Alと自己燃焼反応を起こす金属粉末としてNbを用いた場合、Alの質量をA、Nbの質量をDとしたときに、 $A:D=1:1.13 \sim 1:12.16$ の範囲で配合することが好ましい。この配合割合とすることにより、前述したTi、Niを用いた場合と同様に、マトリックスの全体を低融点のAlから高融点のアルミナイド金属間化合物へと置換することができる。即ち、アルミナイド金属間化合物を予め調製する工程が不要になると共に、Alの融点域において強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を製造することができる。

【0044】 さらには、上記以外の金属粉末を用いる場合においても、当該金属粉末とAlの比を、浸透したAlがアルミナイド金属間化合物に置換される際に、金属粉末とAlが残存しない様な比率とすることで、前述したTi、Ni、Nbを用いた場合と同様に、マトリックスの全体を低融点のAlから高融点のアルミナイド金属間化合物へと置換することができる。即ち、アルミナイド金属間化合物を予め調製する工程が不要になると共に、Alの融点域において強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を製造することができる。

【0045】 なお、本発明において溶融含浸するAlは純Alに限らず、各種Al合金を利用しても同様な効果があることはいうまでもない。また、生成した金属間化合物の融点に比して低温度域において金属間化合物基複合材料の製造が可能であるため、混合粉体を充填した容器、治具や製品型との反応や融着が極めて起こりにくい。従って、製造後の離型性が非常に良好であり、複雑な形状を有する金属間化合物基複合材料の製造にも好適である。

【0046】 本発明の第1の実施態様においては、最終製品である金属間化合物基複合材料に含有する強化材の体積分率が、 $10 \sim 70 \text{ vol} \%$ となるように、強化材と各種金属粉末とを混合して混合粉体を調製することが好ましく、 $30 \sim 60 \text{ vol} \%$ となるように調製することがさらに好ましい。強化材の体積分率が $10 \text{ vol} \%$ に満たない場合には、複合材料として十分な強度を発現することができず、また、 $70 \text{ vol} \%$ を超える場合には、Al溶湯の浸透に不具合が生

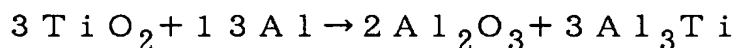
じ、アルミナイド金属間化合物への合成が困難となるからである。従って、本発明は一般的な金属間化合物基複合材料に用いられる強化材の含有率において好適に使用することができる製造方法である。

【0047】 次に、本発明の第2の実施態様について説明する。第1の実施態様と同じく、第2の実施態様もまた強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法であって、予め強化材、金属粉末、及びAlによって還元可能な酸化物粉末を混合し、得られた混合粉体を適当な容器に充填した後、この上方にAlを配し、次いで、多孔体である混合粉体の間隙にAlを溶融含浸することにより、自己燃焼反応、即ち、*in-situ*（その場）合成でアルミナイド金属間化合物を生成する。このとき、Alがアルミナイド金属間化合物に置換してマトリックスが形成され、目的とする金属間化合物基複合材料が製造される。このとき、金属粉末のみを強化材と混合する第1の実施態様の場合と同じく、前処理で金属間化合物を調製する必要がない。従って、製造工程とコストの削減が図られている。

【0048】 更に、Alを溶融含浸した際に、酸化物粉末は金属に還元される。生成した金属は、Alと反応し、アルミナイド金属間化合物を生成して、マトリックスを形成する。一方、酸化物を還元したAlは、アルミナ（ $Al_2O_3$ ）を生成し、マトリックス中に分散する。したがって、従来困難であった強化材の体積分率の高い複合材料を、簡便に製造することが可能である。一例として、強化材に $Al_2O_3$ 、酸化物粉末に $TiO_2$ を使用した場合の反応式を数4に示す。

【0049】

【数4】



【0050】 なお、本発明において用いられる酸化物粉末は、上記の $TiO_2$ に限定されることはなく、Alにより還元可能な化合物であればよい。具体的には、 $TiO_2$ 、 $TiO$ 、 $CaO$ 、 $Cr_2O_3$ 、 $CuO$ 、 $Cu_2O$ 、 $CoO$ 、 $Co_2O_3$ 、 $FeO$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $Fe_3O_4$ 、 $HfO_2$ 、 $Li_2O$ 、 $MnO$ 、 $MgO$ 、 $MoO_3$ 、 $Na_2O$ 、 $Nb_2O_5$ 、 $Nb_2O_3$ 、 $NiO$ 、 $SiO_2$ 、 $V_2O_5$ 、 $WO_3$ 、 $Y_2O_3$ 、 $ZrO_2$ 、ムライト、スピネル、ジルコン酸塩、チタン酸塩、並びにFe、Ti、



Co、Ni、Zr、Si、Nb含有の鉱石等を好適に用いることができる。

【0051】 また、形成されるマトリックス中に残存するAlと、アルミナイド金属間化合物の質量比が、0:10~3:7となるように、Al、金属粉末、及び酸化物粉末を配合する。前処理として金属間化合物を調製する必要がなく、従って、製造工程とコストの削減が容易に達成された金属間化合物基複合材料の製造方法である。また、形成されるマトリックス中にAlを残存させることにより、破壊靱性に優れた金属間化合物基複合材料を得ることが可能となる。

【0052】 なお、残存するAlとアルミナイド金属間化合物の質量比が、3:7よりもAlが多くなると、得られる金属間化合物基複合材料の破壊靱性値は高くなる反面、ヤング率が低下して高剛性材料としての魅力が低下し、またAlの融点域において強度低下等の現象が起こり易くなるために好ましくない。適度な破壊靱性と強度とを示す金属間化合物基複合材料を得るといった観点からは、Alとアルミナイド金属間化合物の質量比を0:10~2:8とすることが好ましい。

【0053】 また、形成されるマトリックス中に、Alが実質的に残存しない配合比で、Al、金属粉末、及び酸化物粉末を配合することが好ましく、このことにより、Alの融点域において強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を得ることができる。

【0054】 更に、金属間化合物基複合材料に占める強化材の体積分率を、10~70vol%とすることが好ましく、30~60vol%とすることがさらに好ましい。強化材の体積分率が10vol%に満たない場合には、複合材料として十分な強度を発現することができず、また、70vol%を超える場合には、Al溶湯の浸透に不具合が生じ、アルミナイド金属間化合物への合成が困難となるからである。従って、本発明の製造方法によれば、より強化材の含有率が高い金属間化合物基複合材料を製造することができる。

【0055】 次に、製造方法の一例を挙げて本発明の詳細を説明する。強化材として、所定の平均粒径を有する $Al_2O_3$ 、AlN、SiC、 $Si_3N_4$ 粒子（粉碎粒）、金属粉末として、所定の平均粒径を有するTi、Ni、Nb、さらに、強化材間隙に含浸する金属として、Alを用いる。このとき、金属粉末の平均粒

径が強化材の平均粒径の5～80%であることが好ましく、10～60%であることがさらに好ましい。これは、金属粉末の平均粒径が強化材の平均粒径の5%に満たない場合には、金属粉末自体の入手が困難及び粉塵爆発の危険性が伴ってくる点から取り扱いが不便となり、80%より大きい場合には、自己燃焼反応の活性度が十分に高められず、生成する金属間化合物基複合材料の緻密化をなし得ることができないためである。

【0056】 例えば、強化材の平均粒径を $50\mu\text{m}$ とした場合には、Alと自己燃焼反応を起こすために用いる金属粉末の平均粒径は、 $2\sim 40\mu\text{m}$ が好ましく、 $5\sim 30\mu\text{m}$ がさらに好ましい。金属粉末の平均粒径が $2\mu\text{m}$ に満たない場合には、当該金属粉末の入手が困難であるとともに取り扱いが不便であり、また、 $40\mu\text{m}$ を超える場合には、当該金属粉末とAlとの自己燃焼反応は生起されるが、緻密な金属間化合物基複合材料を製造することができないためである。

【0057】 溶融含浸するAlと各種金属粉末が、表1に基づく組成からなるアルミナイド金属間化合物となるように調合を行う。目的とするアルミナイド金属間化合物に関しては、例えばTi-Al系について見てみると、代表的にはAl-rich側から $\text{Al}_3\text{Ti}$ 、 $\text{TiAl}$ 、 $\text{Ti}_3\text{Al}$ の3相が存在し、これらの単相材及び2相材等が得られることから、必要となる材料特性に応じてマトリックスとなる金属間化合物相を選択することが出来る。表1に示す割合に従ってAlと各種金属粉末を反応させることにより、マトリックスを低融点のAlから、高融点のアルミナイド金属間化合物へと完全に置換することができる。即ち、アルミナイド金属間化合物を予め調製する工程が不要になると共に、Alの融点域において強度低下等の現象を起こさない金属間化合物基複合材料を製造することができる。なお、反応に伴うAlのアルミナイド金属間化合物への置換に関しては、微視的な残存Alによる強度低下等の特性面での劣化が生じないものであれば問題は無い。具体的には、X線回折もしくは後述するDTA等の熱分析にて残存Alのピークが確認されず、若しくは、不可避免的に残存する微量のAlが確認される程度であれば差し支えないものである。

【0058】

【表 1】

材料系	金属間化合物相	融点 (°C)	Al 組成 (質量%)
Al-Ti 系	$Al_3Ti$	1350	62.5-63.5
	$TiAl$	1480	34-56.2
	$Ti_3Al$	1180	14-23
Al-Ni 系	$Al_3Ni$	854	58
	$Ni_2Al_3$	1133	40-44.7
	$NiAl$	1638	23.5-36
	$Ni_3Al$	1385	12.2-15
Al-Nb 系	$Al_3Nb$	1680	45-47
	$Nb_2Al$	1940	12-17
	$Nb_3Al$	2060	7.6-8.8

【0059】 本発明においては、強化材として繊維、粒子、ウィスカーのいずれかの形状を有する無機材料を用いることが好ましい。このような形状の無機材料を用いることにより、最終製品としての使用用途に沿った強度や特徴を有する金属間化合物基複合材料を製造することができる。なお、本発明の実施は、これらの形状を有する無機材料を用いることに限定されるものでないことはいうまでもない。

【0060】 なお、本発明において「平均粒径  $10 \sim 150 \mu m$  の強化材」というときは、強化材が粒子状の場合にあっては、「平均粒径  $10 \sim 150 \mu m$  の粒子」のことをいい、また強化材が粒子状ではなく、繊維、ウィスカー等の場合にあっては、「繊維長さ／繊維径の比が  $150$  未満の場合で、繊維径が  $0.1 \sim 30 \mu m$  の繊維、ウィスカー等」、若しくは「繊維長さ／繊維径の比が  $150$  以上の場合で、繊維径が  $0.5 \sim 500 \mu m$  の繊維及びウィスカー等」のことをいう。

【0061】 本発明においては、 $Al_2O_3$ 、 $AlN$ 、 $SiC$ 、 $Si_3N_4$  のいずれかを無機材料として使用することが好ましい。金属間化合物基複合材料は、用いる金属間化合物と強化材との組み合わせにより、種々の特性を示す。従って、前記無機材料と組み合わせることにより、用途に応じた金属間化合物基複合材料を適宜製造することができる。表 2 に、各種の無機材料からなる強化材の種類と

、金属間化合物と組み合わせた場合における金属間化合物複合材料の特徴の一例を示す。なお、本発明においては、これらの強化材以外の材質と金属間化合物との組み合わせを妨げるものではない。

【0062】

【表2】

強化材	左記強化材を使用して製造した金属間化合物基複合材料の特徴
$Al_2O_3$	耐酸化性、高強度、耐磨耗性、低熱膨張係数
$AlN$	高熱伝導性、高強度、耐磨耗性、低熱膨張係数
$SiC$	高熱伝導性、導電性、高強度、耐磨耗性、低熱膨張係数
$Si_3N_4$	高強度、耐磨耗性、低熱膨張係数

【0063】 強化材と金属粉末を混合して得られた混合粉体を、適当な形状を有する容器に充填し、約1MPaの圧力にて成形を行った後、この上にAl（市販の純Al）を配置する。このとき用いるAlは純Alに限らず、約90%以上の純度であれば差し支えなく使用することができ、また、各種Al合金を使用しても良い。続いて適度な減圧条件、例えば真空条件下で、Alが溶解する温度（約660℃）より数十℃高い温度、具体的には約700℃まで加熱し、混合粉体の間隙に熔融状態のAlを含浸する。自己燃焼反応に誘起された毛細管浸透が生じて、目的とする複合材料のマトリックスが瞬時に合成される。

【0064】 このとき、成形された混合粉体の上から、予め加熱して熔融状態としたAl溶湯を含浸してもよいが、前述のように、混合粉体上に、例えば固体のAlを配置した後、加熱することによってAlを熔融含浸することが、予めAl溶湯を準備する手間や特定の設備が不要となるために好ましい。

【0065】 マトリックスの合成自体は非常に短時間にて完了するため、加熱に要する時間は、数分程度で十分である。更に、自己燃焼反応が終了した後に、得られた複合材料のマトリックスの均質化及び安定化を図るために等温保持や加熱保持を行えばよい。このときの保持温度は、材料系によって若干左右されるが、自己燃焼反応が生じた温度と同一な温度から約400～500℃程度高い温度で実施することが好ましく、また保持時間は約1時間から必要に応じて数時間実

施すればよい。

【0066】 上述してきた、本発明に係る金属間化合物基複合材料の製造方法によれば、その特徴を生かして種々の金属間化合物基複合材料を製造することができる。また、大型、或いは複雑形状を有する金属間化合物基複合材料の製造が極めて容易であるとともに、最終製品の形状を考慮したニアネットシェイプ化を行うことができるために、その後の工程において機械加工処理が不必要である。さらに、前処理工程であるアルミナイド金属間化合物の調製も不必要となるために、製造コストの削減を容易に達成することができる。

【0067】

【実施例】 以下、本発明の具体的な実施結果を説明する。

(アルミナイド金属間化合物基複合材料の製造)

表3に示すような、平均粒径が $47 \sim 54 \mu\text{m}$ である $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{AlN}$ 、 $\text{SiC}$ 、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 強化材(粉碎粒)、平均粒径が $10 \sim 125 \mu\text{m}$ である $\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}$ 、 $\text{Nb}$ 金属粉末、さらに、溶融含浸する $\text{Al}$ (市販の純 $\text{Al}$ ( $\text{AlO50}$ 、純度 $>99.5\%$ ))を用意した。次に、 $\text{Al}$ と各種金属粉末が、表1に示す組成からなるアルミナイド金属間化合物となるように金属粉末の調合を行い、さらに表3に示す強化材体積率となるように強化材を混合して混合粉体を調製した。これを所定の容器に充填し、約 $1\text{MPa}$ の圧力にて成形を行った後、この上に $\text{Al}$ を設置した。 $0.00133\text{Pa}$ の真空下でしばらく保持した後、同圧力下、 $700^\circ\text{C}$ まで加熱し、約1時間保持後に徐冷し、表3に示す金属間化合物基複合材料(試料No. 1~11)を製造した。

【0068】

【表 3】

試料 No.	材 料		粒 径		強化材体積率 (vol%)	合成結果及 び緻密化	備 考
	強化材	金属粉末	強化材 ( $\mu\text{m}$ )	金属粉末 ( $\mu\text{m}$ )			
1	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ti	47	125	40	×	合成は可能。緻密化不完全
2	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ti	47	44	40	×	合成は可能。緻密化不完全
3	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ti	47	10	40	○	—
4	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ti	47	10	10	○	—
5	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ti	47	10	30	○	—
6	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ti	47	10	50	○	—
7	AlN	Ti	50	10	40	○	—
8	SiC	Ti	54	10	40	○	—
9	$\text{Si}_3\text{N}_4$	Ti	47	10	40	○	—
10	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Ni	47	10	40	○	—
11	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Nb	47	20	40	○	—

[含浸条件]

・含浸材料：純Al(A1050)

・含浸温度：700℃

## (合成結果及び緻密化の解析)

前述の工程により製造した各アルミナイド金属間化合物基複合材料から試験片を切り出し、SEM観察等を行って、製造した各金属間化合物基複合材料の緻密化の程度を解析した。結果を表3に示す。また、各試験片について熱分析を行ったところ、本発明の製造方法に係る、試料No. 1～11についてはAlの溶解反応に伴う吸熱反応は測定されず、合成後の生成相となるアルミナイド金属間化合物からのピークのみが測定された。即ち、マトリックス全体が反応によりAlからアルミナイド金属間化合物へと完全に置換されていることを確認した。また、強化材である $Al_2O_3$ 粒子に混合するTi粉末の粒径を変化させたとき、Ti粉末が $125\mu m$ 及び $44\mu m$ の場合(試料No. 1、2)においては、アルミナイド金属間化合物への合成は可能であったがマトリックスの緻密化が為し得られなかった。従って、マトリックスの全体をアルミナイド金属間化合物に置換するためには、添加する強化材の粒径に比して、より小さな粒径のTi粉末を使用する必要があることを確認できた。これは、金属粉末の粒径が強化材の粒径に比して小さくなることによって比表面積が増大し、自己燃焼反応の活性化度が高められた結果であると考えられる。なお、熱分析の方法は以下の通りである。

## 【0070】

## [熱分析]：

差動型示差熱天秤装置TG-DTA(RIGAKU製、TG8120型)を用いて、Arガス雰囲気中にて、昇温速度 $20^\circ C/min$ の条件下、所定の温度まで加熱して熱分析を行った。

## 【0071】

## (アルミナイド(Al-Ti系)金属間化合物基複合材料の製造)

表4に示すような、平均粒径が $47\mu m$ である $Al_2O_3$ 強化材(粉碎粒)、平均粒径が $10\mu m$ であるTi金属粉末、さらに溶融含浸するAl(市販の純Al(A1050、純度 $>99.5\%$ ))を用意した。次に、含浸するAlの量(質量%)を20～80%の間で変化し、前述のアルミナイド金属間化合物基複合材料の製造実施例と同様の条件下にて、表4に示す金属間化合物基複合材料(試料No. 12～22)を製造した。

【0072】

【表4】

試料No.	材料		粒径		含浸Al量 (mass%)	高温曲げ強度 (400℃) (MPa)	備考
	強化材	金属粉末	強化材 ( $\mu\text{m}$ )	金属粉末 ( $\mu\text{m}$ )			
12	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	82	83	Al <sub>3</sub> Ti+Al (Al残存)
13	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	74	151	Al <sub>3</sub> Ti+Al (Al残存)
14	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	71	178	Al <sub>3</sub> Ti+Al (Al残存)
15	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	67	196	Al <sub>3</sub> Ti+Al (Al残存)
16	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	63	>200	Al <sub>3</sub> Ti
17	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	62	>200	TiAl <sub>2</sub> +Al <sub>3</sub> Ti
18	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	61	>200	TiAl <sub>2</sub> +Al <sub>3</sub> Ti
19	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	50	>200	TiAl+TiAl <sub>2</sub>
20	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	40	>200	TiAl
21	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	30	>200	Ti <sub>3</sub> Al+TiAl
22	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Ti	47	10	20	>200	Ti <sub>3</sub> Al
比較例1	—	—	—	—	—	<50	Al合金 (市販材: 2000、6000、7000番系等)

[含浸条件]

・含浸材料: 純Al (A1050)

・含浸温度: 700℃



【0073】

(合成結果及び高温曲げ強度の測定)

前記工程により製造した各アルミナイド金属間化合物基複合材料から試験片を切り出し、不活性ガス雰囲気にて差動型示差熱天秤装置TG-DTA (RIGAKU製、TG8120型)を用いて熱分析を行った。本発明に係る、含浸するAl溶湯の量を20～63質量%として製造した場合(試料No. 16～22)においては、Alの溶解反応に伴う吸熱反応は測定されず、合成後の生成相となるアルミナイド金属間化合物からのピークのみが測定された。即ち、マトリックス全体が反応によりAlからアルミナイド金属間化合物へと完全に置換されていることを確認した。これに対し、含浸したAl溶湯の量を64～80質量%として製造した場合(試料No. 12～15)においては、Alの溶解反応に伴う吸熱反応が測定され、マトリックス中にAlが残存していることを確認した。

【0074】 また、上記の試料(No. 12～22)、及び比較例としてAl合金について、400℃における高温曲げ強度試験を行った。結果を表4に示す。マトリックスにAlが残存している試料No. 12～15についてはいずれの試料についても曲げ強度が200MPa以上の値を示さなかったのに対し、本発明に係る製造方法により製造した試料No. 16～22においては全て曲げ強度が200MPa以上の値を示した。マトリックスが完全にアルミナイド金属間化合物へと置換したことが、高温曲げ強度の増加に寄与したものと考えられる。

【0075】

(各種強化材を用いた金属間化合物基複合材料の製造)

表5に示すような、平均粒径47～54 $\mu\text{m}$ である $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、SiC、AlN、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 強化材(粉碎粒)、平均粒径が10 $\mu\text{m}$ であるTi金属粉末、さらに、熔融含浸するAl(市販の純Al(A1050、純度>99.5%))を用意した。次に、含浸するAlの量(質量%)を30～50%の間で変化し、前述のアルミナイド金属間化合物基複合材料の製造実施例と同様の条件下にて、表5に示す金属間化合物基複合材料(試料No. 23～34)を製造した。なお、生成するマトリックスが $\text{Al}_3\text{Ti}$ 相となるように、Ti金属粉末とAlの使用量を調整した。

【0076】 また、比較例として、強化材とマトリックスの両方をその場合成する方法により、複合材料を製造した。

まず、平均粒径  $0.6 \mu\text{m}$  の  $\text{TiO}_2$  粒子からなる円筒体試料を  $300\text{MPa}$  でプレス成形後、加圧含浸装置内に設置し、 $1000^\circ\text{C}$  まで昇温後、予備加熱として30分保持後に  $\text{Al}$  溶湯を約  $30\text{MPa}$  にて加圧含浸した。その後、反応の促進及び組織の均質化のため1時間保持後に冷却して、複合材料を得た（比較例2）。なお、強化材体積率は、約  $42\text{vol}\%$  であった。

【0077】

（合成結果及び物理特性の測定）

前述の各方法により製造した各アルミナイド金属間化合物基複合材料から試験片を切り出し、熱膨張係数、及び熱伝導率を測定した。結果を表5に示す。なお、熱膨張係数と熱伝導率の測定方法は以下の通りである。

【0078】

〔熱膨張係数の測定〕：

熱膨張計（マックスサイエンス製：TD-5000S）を用いて、 $\text{Ar}$  ガス雰囲気中にて室温から所定の温度までの測定を行った。

【0079】

〔熱伝導率の測定〕：

熱定数測定装置（真空理工製：TC-7000）を用いて、レーザーフラッシュ法に従って熱伝導率を測定した。なお、測定は室温にて行った。

【0080】

【表 5】

試料No.	強化材 (粒子)			金属粉末		物理特性	
	強化材種	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	強化材体積率 (vol %)	粉末種	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	熱膨張係数 (ppm/K)	熱伝導率 (W/m·K)
23	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	30	Ti	10	11.1	40.2
24	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	40	Ti	10	10.4	39.4
25	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	50	Ti	10	9.9	39.1
26	SiC	54	30	Ti	10	8.7	56.4
27	SiC	54	40	Ti	10	8.1	63.7
28	SiC	54	50	Ti	10	7.6	75.5
29	AlN	50	30	Ti	10	9.2	77.3
30	AlN	50	40	Ti	10	8.7	92.0
31	AlN	50	50	Ti	10	8.3	105.1
32	$\text{Si}_3\text{N}_4$	47	30	Ti	10	8.8	32.2
33	$\text{Si}_3\text{N}_4$	47	40	Ti	10	8.0	32.0
34	$\text{Si}_3\text{N}_4$	47	50	Ti	10	7.3	31.5
比較例 2	$\text{Al}_2\text{O}_3$	—	42	—	—	10.6	31.7

【0081】 表5に示すように、強化材が $\text{Al}_2\text{O}_3$ である場合、比較例2に示す、強化材とマトリックスの両方をその場合成する製造方法においては、強化材体積率が固定されるのに対し、本発明においては、マトリックスのみその場合成されるため、予め添加する調合量を変化するだけで強化材体積率の制御が可能である。また、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 以外の強化材としてSiC、AlN、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ を用いることや、それらの強化材体積率を増加することにより、熱膨張係数が低減された複

合材料を製造することができる。

【0082】 また、熱伝導率に関しては、SiCを用いた場合においては、 $Al_2O_3$ 、 $Si_3N_4$ を用いた場合の約2倍、更にAlNを用いた場合においては約3倍まで増加することが判明した。したがって、本発明によれば、マトリックスのその場合成が可能だけでなく、強化材の種類やその体積率を変化させることによって、目的とする材料特性を有する複合材料を製造することが可能である。

【0083】

(酸化物粉末を用いた金属間化合物基複合材料の製造)

表6に示すような、平均粒径 $47\mu m$ の $Al_2O_3$ 粒子、平均粒径 $10\mu m$ のTi粉末及び平均粒径 $0.6\mu m$ の $TiO_2$ 粉末、さらに、溶融合浸するAl（市販の純Al（Al050、純度 $>99.5\%$ ））を用意した。次に、AlとTi粉末、及び $TiO_2$ 粉末が、 $Al_3Ti$ 組成からなる金属間化合物となるように使用量を調整した後、表6に示す強化材体積率となるように $Al_2O_3$ 粒子を混合して所定の容器に充填し、約 $1MPa$ の圧力にて軽い成形を行った後、この上にAlを設置した。 $0.00133Pa$ の真空下でしばらく保持した後、同圧力下、 $700^\circ C$ まで加熱し、約1時間保持後に徐冷して、表6に示す金属間化合物基複合材料（試料No. 35～39）を製造した。

【0084】 また、得られた各試料について、既述の方法に従って合成結果及び緻密化の解析を行った。結果を表6に示す。なお、表6における強化材の体積率とは、その場合成された $Al_2O_3$ を含めた体積率のことを示すものである。

【0085】

【表 6】

試料 N o .	強化材 (粒子)			金属粉末		酸化物粉末		合成結果及 び緻密化	備考
	強化材種	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	強化材体積率 (vol %)	粉末種	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	粉末種	粒径 ( $\mu\text{m}$ )		
35	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	30	Ti	10	$\text{TiO}_2$	0.6	◎	
36	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	40	Ti	10	$\text{TiO}_2$	0.6	◎	
37	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	50	Ti	10	$\text{TiO}_2$	0.6	◎	
38	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	60	Ti	10	$\text{TiO}_2$	0.6	◎	
39	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	70	Ti	10	$\text{TiO}_2$	0.6	◎	
比較例 3	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	60	Ti	10	—	—	○	合成は可能。緻密化不完全
比較例 4	$\text{Al}_2\text{O}_3$	47	70	Ti	10	—	—	○	合成は可能。緻密化不完全

【0086】 本発明の製造方法に係る、試料 N o . 35～39 については、強

化材体積率が比較的大きな場合（50 vol %超）であっても、マトリックス全体が反応によりアルミナイド金属間化合物へと完全に置換されていることが確認できた。これは、予め添加されていた $Al_2O_3$ 粒子の間隙において、 $TiO_2$ 粉末の還元反応が誘起され、その場合成された $Al_2O_3$ がこの間隙を充填することにより、強化材体積率が向上したものと考えられる。

【0087】 なお、比較例3、4は、 $TiO_2$ 粉末を用いずに作製した金属間化合物基複合材料である。これらの場合、Alの熔融含浸に不具合を生じてしまい、マトリックスの緻密化に不具合を生ずることが判明した。

【0088】

（マトリックスの組成を変化させた金属間化合物基複合材料の製造）

平均粒径 $47\mu m$ の $Al_2O_3$ 粒子、平均粒径 $10\mu m$ のTi粉末、さらに、熔融含浸するAl（市販の純Al（A1050、純度>99.5%））を用意した。次に、AlとTi粉末が、 $Al_3Ti$ 組成からなる金属間化合物、及び、一部Alが残存した金属/金属間化合物の混合相となるように各使用量を調整した。次いで、表7に示すように、強化材体積率40%となるように $Al_2O_3$ 粒子を混合して所定の容器に充填し、約1MPaの圧力にて軽い成形を行った後、この上にAlを設置した。0.00133Paの真空下でしばらく保持した後、同圧力下、700℃まで加熱し、約3分間保持後に徐冷して、表7に示す金属間化合物基複合材料（試料No. 40～44）を製造した。また、比較例5として、強化材が $Al_2O_3$ 粒子、マトリックスがAlである金属基複合材料を、比較例6として、Al合金（A5052）を用意した。

【0089】 各試料について、既述の方法に従って合成結果及び緻密化の解析、金属：金属間化合物の質量比、熱膨張係数、ヤング率、破壊靱性値の測定を行った。なお、ヤング率、及び、金属：金属間化合物の質量比の測定方法は以下の通りである。結果を表7に示す。また、試料No. 41、42、及び44については、合成結果の解析としてXRD分析を行った。各試料のXRD分析結果を示すチャートを図1に示す。なお、図1中、「0：10」、「2：8」、及び「3：7」とは、Al：アルミナイド金属間化合物の質量比を示す値である。

【0090】

〔金属：金属間化合物の質量比の測定〕：

X R D 分析にて予め所定の質量比に調整した金属及び金属間化合物の混合粉末を用いて検量線を作成しておき、これを元にして、マトリックス組成を変化させた試料を X R D 分析することにより得られた測定結果の X 線強度より算出した。

【 0 0 9 1 】

〔ヤング率の測定〕：

得られた複合材料から所定形状の試料を切り出し、J I S R 1 6 0 1 に従って、4 点曲げ試験を実施することによりヤング率を測定した。

【 0 0 9 2 】

【表 7】

試料 N o.	強化材		金属粉末		含浸 Al 量 (mass%)	金属 : 金属間化合物 (質量比)	熱膨張係数 (ppm/K)	ヤング率 (GPa)	破壊靱性値 (MPa · m <sup>1/2</sup> )	備考
	強化材種	粒径 (μm)	強化材体積率 (vol%)	粉末種	粒径 (μm)					
40	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	47	40	Ti	10	5:5	14.1	139	10.3	Al <sub>3</sub> Ti+Al
41	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	47	40	Ti	10	3:7	12.3	178	8.2	Al <sub>3</sub> Ti+Al
42	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	47	40	Ti	10	2:8	11.8	191	6.9	Al <sub>3</sub> Ti+Al
43	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	47	40	Ti	10	1:9	11.0	203	4.8	Al <sub>3</sub> Ti+Al
44	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	47	40	Ti	10	0:10	10.4	212	4.3	Al <sub>3</sub> Ti
比較例 5	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	47	40	—	—	—	16.2	120	16.3	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Al 複合材料
比較例 6	—	—	—	—	—	—	27.3	71	25.4	Al 合金 (A5052)

【0093】 本発明の製造方法に係る、試料 N o. 41～44 については、マ



トリックスがA1である比較例5に比してヤング率が高くなるとともに、熱膨張係数が低減することが確認できた。即ち、ヤング率の高い複合材料を得るためには、マトリックスの全体を金属間化合物とすることが好ましい。一方、所定量のA1を残存させることによって、得られる複合材料の破壊靱性値は上昇したが、残存するA1の量が多くなると（試料No. 40）、ヤング率の急激な低下、及び、熱膨張係数の増大を招くことが判明した。従って、マトリックスを形成するA1と金属間化合物の質量比は、0 : 10 ~ 3 : 7の範囲内で所望の比率とすることが好ましい。

【0094】 図1に示すように、A1 : アルミナイド金属間化合物の質量比を、0 : 10からA1の組成比率を増加させて3 : 7とすることにより、XRD分析結果を示すチャートにおいてA1の存在を示すピークの出現を確認することができた。また、合成後の生成相となるアルミナイド金属間化合物、及び、残存させたA1は、前述の差動型示差熱天秤装置を用いた熱分析による場合と同じく、XRD分析によっても確認し得ることが判明した。

【0095】 即ち、XRD分析の結果からも明らかなように、本発明によればA1とTiの配合比を調整することにより、マトリックスを構成するアルミナイド金属間化合物とA1が所望の比率に制御された金属間化合物基複合材料を製造することが可能である。

【0096】

【発明の効果】 以上説明したように、本発明の金属間化合物基複合材料の製造方法によれば、各種強化材に混合した金属粉末とA1溶湯を自己燃焼反応することにより、従来の製造方法に比して低温、且つ、無加圧条件下で金属間化合物基複合材料を製造することができる。また、*in-situ*（その場）でアルミナイド金属間化合物を合成していることから、前処理工程等を減ずることが可能であるとともに、強化材体積率の大きい複合材料を製造することができる。さらには、最終製品の形状を考慮したニアネットシェイプ化が可能であることから、製造工程の低減と共に製造コストの削減を図ることが可能である。

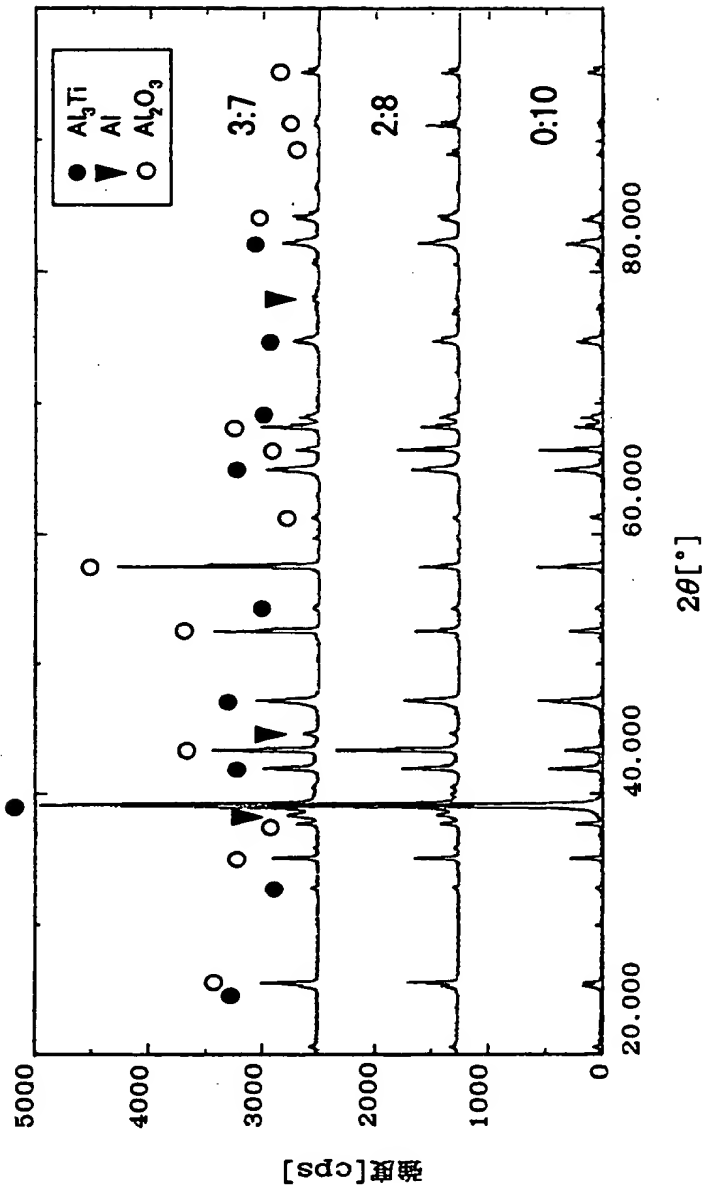
【図面の簡単な説明】

【図1】 A1 : アルミナイド金属間化合物（質量比） = 0 : 10、2 : 8、及

び、3 : 7である金属間化合物基複合材料のX R D分析結果を示すチャートである。

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 製造工程を削減し、且つ大型・複雑形状を有する金属間化合物基複合材料の製造方法を提供する。

【解決手段】 強化材と金属間化合物からなる金属間化合物基複合材料の製造方法である。強化材と金属粉末とを混合し、得られた混合粉体を容器に充填した後、充填された混合粉体の上方に A 1 を配し、次いで、混合粉体の間隙に A 1 を溶融含浸することにより、金属粉末と A 1 とが自己燃焼反応を生起し、A 1 がアルミナイド金属間化合物に置換される際に、残存する A 1 と、アルミナイド金属間化合物の質量比が、0 : 1 0 ~ 3 : 7 となるように、A 1 と金属粉末を配合する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2001-149499
受付番号	50100720247
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成13年 5月23日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000004064
【住所又は居所】	愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
【氏名又は名称】	日本碍子株式会社

【代理人】

【識別番号】	100088616
【住所又は居所】	東京都台東区浅草橋3丁目20番18号 第8菊 星タワービル3階 渡邊一平国際特許事務所
【氏名又は名称】	渡邊 一平

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004064]

1. 変更年月日 1990年 8月24日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

氏 名 日本碍子株式会社